

## 論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称	博 士 （ 理 学 ）	氏名	上 川 修 平
学位授与の要件	学位規則第4条第①・2項該当		
<p>論 文 題 目</p> <p>Field Induced Quadrupole Phase Transition in <math>\text{HoTr}_2\text{Al}_{10}</math> (<math>\text{Tr}=\text{Fe}, \text{Ru}</math>) under an Orthorhombic Crystal Electric Field</p> <p>(<math>\text{HoTr}_2\text{Al}_{10}</math> (<math>\text{Tr}=\text{Fe}, \text{Ru}</math>) の直方晶結晶場下における磁場誘起四極子相転移)</p>			
<p>論文審査担当者</p> <p>主 査 教 授 鈴 木 孝 至</p> <p>審査委員 教 授 高 畠 敏 郎</p> <p>審査委員 教 授 世 良 正 文</p>			
<p>〔論文審査の要旨〕</p> <p>本論文の著者は、希土類イオンの <math>4f</math> 電子状態が 17 重にもおよぶ全角運動量多重項を有する <math>\text{Ho}</math> を含む金属間化合物に着目し、比較的結晶場効果の弱い低対称な構造を有する系においては、擬縮重状態を起源とする磁場誘起の高次多極子秩序が起こり得るとの挑戦的予想を持った。著者は、この予想を確かめるために、<math>\text{Ho}</math> が多数のリガンド原子に囲まれた直方晶構造をもつ二つの化合物 <math>\text{HoFe}_2\text{Al}_{10}</math> と <math>\text{HoRu}_2\text{Al}_{10}</math> に関する研究を遂行し、本論分を纏めた。</p> <p>論文の構成は次の通りである。第1章では序論として、局在 <math>4f</math> 電子の多極子、超音波分光実験による4極子秩序の観測、結晶場、<math>\text{HoFe}_2\text{Al}_{10}</math> と <math>\text{HoRu}_2\text{Al}_{10}</math> の先行研究結果が紹介され、第2章は研究目的が記されている。第3章において実験法が述べられ、単結晶の育成法、X線回折実験法、磁場中超音波分光法、比熱測定法、磁性測定法が解説されている。第4, 5, 6章においては、<math>\text{HoFe}_2\text{Al}_{10}</math> と <math>\text{HoRu}_2\text{Al}_{10}</math> に関する実験結果、考察、結論がそれぞれ記されている。</p> <p><math>\text{HoFe}_2\text{Al}_{10}</math> に関する研究成果の概略を纏めると次の通りである。零磁場において横波弾性率 <math>C_{55}</math> を測定すると弾性率の減少（いわゆるソフト化）が 0.5 K まで観測されたが、相転移を示す弾性異常はみられなかった。これは、零磁場において本物質は相転移しないことを示唆している。一方、<math>a</math> 軸と <math>c</math> 軸方向に磁場 <math>H</math> を印加したところ、<math>C_{55}</math> のソフト化は <math>H \parallel a</math> では 0.6 T で <math>T_Q=0.8</math> K, <math>H \parallel c</math> では 0.4 T で <math>T_Q=0.75</math> K でそれぞれ停止し、さらに磁場強度を増大させると、<math>a</math> 軸と <math>c</math> 軸の両軸において、<math>T_Q</math> に向かう <math>C_{55}</math> のソフト化が増大した。これらの結果をもとに、<math>\text{HoFe}_2\text{Al}_{10}</math> における磁場誘起相転移の存在と <math>H \parallel a, c</math> の磁気相図の形状を明らかにした。<math>T_Q</math> と表現した秩序相境界は、磁場に対しリエントラントな振る舞いをもつ。磁場中 <math>C_{55}</math> の <math>T_Q</math> に向かうソフト化の増大は、<math>a</math> 軸と <math>c</math> 軸方向への磁場印加により <math>O_{xx}</math> 型四極子秩序が誘起されたのではないかと推定した。それら実験結果の起源を明確化するため、</p>			

直方晶の結晶場ハミルトニアンに、歪み・4極子相互作用、4極子間相互作用およびゼーマンエネルギーを考慮した結晶場解析を行った。直方晶では、Hoの全角運動量多重項が17個の1重項に分裂しているため困難な解析であるが、対応可能なプログラムを開発して克服した。比熱、磁化、弾性率に対する解析の結果、結晶場基底状態と第一励起状態は約2.6 K離れており、その間に $O_{zx}$ の遷移があることが明らかになった。さらに、その基底状態と第一励起状態のゼーマン分裂を計算したところ、 $a$ 軸と $c$ 軸方向への磁場印加によって基底状態と第一励起状態が接近することが判明した。すなわち、 $\text{HoFe}_2\text{Al}_{10}$ での磁場誘起四極子秩序は磁場中での擬縮重状態の形成に起因すると説明できる。直方晶のような低対称性下における磁場誘起4極子秩序の可能性を指摘するのは、本研究が初めてである。この成果は、本研究当初の挑戦的予想の正しさを証明したものである。

$\text{HoRu}_2\text{Al}_{10}$ に関する研究成果の概略は次の通りである。零磁場における反強磁性転移温度 $T_N=5.2$  Kで縦波弾性率 $C_{11}$ ,  $C_{22}$ ,  $C_{33}$ がステップ型のソフト化を示す一方、 $T_N$ 以下では全てのモードがハード化に転じた。これらの弾性異常は磁気秩序による熱力学的効果として説明した。さらに磁場中の比熱、磁化、弾性率測定から $a$ 軸、 $b$ 軸、 $c$ 軸の磁気相図を作成した。 $H//b$ の場合、 $T_N$ は磁場増加に伴って単調に減少し、秩序相は1.0 T付近で閉じる。このような $T_N$ の変化はゼーマン効果とスピン相互作用の競合に起因する。一方、 $H//a$ ,  $H//c$ では、 $T_N$ が磁場増加に伴って減少するが、相境界が5 T付近で変曲点を示すことを見出した。 $H//c$ での磁場中超音波測定によって、8 T以上で $T_N$ に向かう $C_{11}$ ,  $C_{22}$ ,  $C_{33}$ のソフト化を観測した。 $\text{HoFe}_2\text{Al}_{10}$ の結晶場解析で用いた有効ハミルトニアンに $\text{HoRu}_2\text{Al}_{10}$ におけるスピン交換相互作用も加えて行った結晶場解析の結果も考慮すると、 $C_{11}$ ,  $C_{22}$ ,  $C_{33}$ のソフト化は $H//c$ における高磁場で $O_2^0$ 型4極子モーメントの期待値増大に関連する現象とみられる。以上の観点から $H//a$ ,  $H//c$ の相境界にみられた5 T付近の変曲点は反強磁性スピン秩序状態において4極子モーメント期待値の増大に起因すると結論した。

以上の内容は学術的価値が高く、博士論文としてふさわしいと判断し、本論文の著者は博士（理学）の学位を受けるのに十分な資格を有するものと認める。